

PCT

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

(PCT Article 18 and Rules 43 and 44)

Applicant's or agent's file reference R. 34048 Kut/M1	FOR FURTHER ACTION see Notification of Transmittal of International Search Report (Form PCT/ISA/220) as well as, where applicable, item 5 below.	
International application No. PCT/DE 99/ 03155	International filing date (day/month/year) 01/10/1999	(Earliest) Priority Date (day/month/year) 02/10/1998
Applicant ROBERT BOSCH GMBH et al.		

This International Search Report has been prepared by this International Searching Authority and is transmitted to the applicant according to Article 18. A copy is being transmitted to the International Bureau.

This International Search Report consists of a total of 2 sheets.

☒ It is also accompanied by a copy of each prior art document cited in this report.

1. Basis of the report

- a. With regard to the language, the international search was carried out on the basis of the international application in the language in which it was filed, unless otherwise indicated under this item.

☐ the international search was carried out on the basis of a translation of the international application furnished to this Authority (Rule 23.1(b)).

- b. With regard to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application, the international search was carried out on the basis of the sequence listing:

☐ contained in the international application in written form.

☐ filed together with the international application in computer readable form.

☐ furnished subsequently to this Authority in written form.

☐ furnished subsequently to this Authority in computer readable form.

☐ the statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.

☐ the statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished

2. ☐ Certain claims were found unsearchable (See Box I).

3. ☐ Unity of invention is lacking (see Box II).

4. With regard to the title,

☒ the text is approved as submitted by the applicant.

☐ the text has been established by this Authority to read as follows:

5. With regard to the abstract,

☒ the text is approved as submitted by the applicant.

☐ the text has been established, according to Rule 38.2(b), by this Authority as it appears in Box III. The applicant may, within one month from the date of mailing of this international search report, submit comments to this Authority.

6. The figure of the drawings to be published with the abstract is Figure No.

☒ as suggested by the applicant.

☐ because the applicant failed to suggest a figure.

☐ because this figure better characterizes the invention.

1

☐ Non of the figures.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

CT/DE 99/03155

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
IPC 7 C04B35/58 C04B35/593

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
IPC 7 C04B F23Q

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	EP 0 520 211 A (HERCULES INC.) 30 December 1992 (1992-12-30) page 2, line 32 -page 3, line 42; examples 1,2	1-12, 15, 17, 19
A	EP 0 335 382 A (NIPPONDENSO CO., LTD.) 4 October 1989 (1989-10-04) cited in the application example 2; table 2	1-27

☐ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents :

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E" earlier document but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

1 March 2000

Date of mailing of the international search report

08/03/2000

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Hauck, H

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/DE 99/03155

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 520211	A	30-12-1992	CA 2068979 A	25-12-1992
			DE 69212398 D	29-08-1996
			DE 69212398 T	05-12-1996
			JP 5221728 A	31-08-1993
			US 5439855 A	08-08-1995
EP 335382	A	04-10-1989	DE 68917966 D	13-10-1994
			DE 68917966 T	16-03-1995
			JP 1317170 A	21-12-1989
			JP 2545970 B	23-10-1996
			US 5086210 A	04-02-1992

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

(PCT Article 18 and Rules 43 and 44)

Applicant's or agent's file reference R. 34048 Kut/M1	FOR FURTHER ACTION see Notification of Transmittal of International Search Report (Form PCT/ISA/220) as well as, where applicable, item 5 below.	
International application No. PCT/DE 99/ 03155	International filing date (day/month/year) 01/10/1999	(Earliest) Priority Date (day/month/year) 02/10/1998
Applicant ROBERT BOSCH GMBH et al.		

This International Search Report has been prepared by this International Searching Authority and is transmitted to the applicant according to Article 18. A copy is being transmitted to the International Bureau.

This International Search Report consists of a total of 2 sheets.

☒ It is also accompanied by a copy of each prior art document cited in this report.

1. Basis of the report

a. With regard to the language, the international search was carried out on the basis of the international application in the language in which it was filed, unless otherwise indicated under this item.

☐ the international search was carried out on the basis of a translation of the international application furnished to this Authority (Rule 23.1(b)).

b. With regard to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application, the international search was carried out on the basis of the sequence listing:

☐ contained in the international application in written form.

☐ filed together with the international application in computer readable form.

☐ furnished subsequently to this Authority in written form.

☐ furnished subsequently to this Authority in computer readable form.

☐ the statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.

☐ the statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished

2. ☐ Certain claims were found unsearchable (See Box I).

3. ☐ Unity of invention is lacking (see Box II).

4. With regard to the title,

☒ the text is approved as submitted by the applicant.

☐ the text has been established by this Authority to read as follows:

5. With regard to the abstract,

☒ the text is approved as submitted by the applicant.

☐ the text has been established, according to Rule 38.2(b), by this Authority as it appears in Box III. The applicant may, within one month from the date of mailing of this international search report, submit comments to this Authority.

6. The figure of the drawings to be published with the abstract is Figure No.

☒ as suggested by the applicant.

☐ because the applicant failed to suggest a figure.

☐ because this figure better characterizes the invention.

1
☐ None of the figures.

EM360464549US

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

P. NO. 99/03155

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
 IPC 7 C04B35/58 C04B35/593

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
 IPC 7 C04B F23Q

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	EP 0 520 211 A (HERCULES INC.) 30 December 1992 (1992-12-30) page 2, line 32 -page 3, line 42; examples 1,2	1-12, 15, 17, 19
A	EP 0 335 382 A (NIPPONDENSO CO., LTD.) 4 October 1989 (1989-10-04) cited in the application example 2; table 2	1-27

☐ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

1 March 2000

Date of mailing of the international search report

08/03/2000

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
 NL - 2280 HV Rijswijk
 Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
 Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Hauck, H

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/DE 99/03155

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 520211	A	30-12-1992	CA 2068979 A	25-12-1992
			DE 69212398 D	29-08-1996
			DE 69212398 T	05-12-1996
			JP 5221728 A	31-08-1993
			US 5439855 A	08-08-1995
EP 335382	A	04-10-1989	DE 68917966 D	13-10-1994
			DE 68917966 T	16-03-1995
			JP 1317170 A	21-12-1989
			JP 2545970 B	23-10-1996
			US 5086210 A	04-02-1992

PCT **ANTRAG**

Der Unterzeichnete beantragt, daß die vorliegende internationale Anmeldung nach dem Vertrag über die internationale Zusammenarbeit auf dem Gebiet des Patentwesens behandelt wird

Vorname	Meldeamt auszufüllen
Internationales Aktenzeichen	
Internationales Anmeldedatum	
Name des Anmeldeamts und "PCT International Application"	
Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts (falls gewünscht) (max. 12 Zeichen) R. 34048 Kut/Mi	

Feld Nr. I BEZEICHNUNG DER ERFINDUNG

Verfahren zur Herstellung von Kompositwerkstoffen und Vertreter solcher Kompositwerkstoffe

Feld Nr. II ANMELDER

Name und Anschrift (Familienname, Vorname; bei juristischen Personen vollständige amtliche Bezeichnung. Bei der Anschrift sind die Postleitzahl und der Name des Staats anzugeben. Der in diesem Feld in der Anschrift angegebene Staat ist der Staat des Sitzes oder Wohnsitzes des Anmelders, sofern nachstehend kein Staat des Sitzes oder Wohnsitzes angegeben ist.)

ROBERT BOSCH GMBH
Postfach 30 02 20
70442 Stuttgart
Bundesrepublik Deutschland (DE)

☐ Diese Person ist gleichzeitig Erfinder

Telefonnr.:
0711/811-23062

Telefaxnr.:
0711/811-331 81

Fernschreibnr.:

Staatsangehörigkeit (Staat): DE

Sitz oder Wohnsitz (Staat): DE

Diese Person ist Anmelder für folgende Staaten: ☐ alle Bestimmungsstaaten ☒ alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme der Vereinigten Staaten ☐ nur die Vereinigten Staaten von Amerika ☐ die im Zusatzfeld angegebenen Staaten

Feld Nr. III WEITERE ANMELDER UND/ODER (WEITERE) ERFINDER

Name und Anschrift (Familienname, Vorname; bei juristischen Personen vollständige amtliche Bezeichnung. Bei der Anschrift sind die Postleitzahl und der Name des Staats anzugeben. Der in diesem Feld in der Anschrift angegebene Staat ist der Staat des Sitzes oder Wohnsitzes des Anmelders, sofern nachstehend kein Staat des Sitzes oder Wohnsitzes angegeben ist.)

KNOLL, Guenter
Brahmsweg 33
70195 Stuttgart
DE

Diese Person ist
☐ nur Anmelder
☒ Anmelder und Erfinder
☐ nur Erfinder (Wird dieses Kästchen angekreuzt, so sind die nachstehenden Angaben nicht nötig.)

Staatsangehörigkeit (Staat): DE

Sitz oder Wohnsitz (Staat): DE

Diese Person ist Anmelder für folgende Staaten: ☐ alle Bestimmungsstaaten ☐ alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme der Vereinigten Staaten ☒ nur die Vereinigten Staaten von Amerika ☐ die im Zusatzfeld angegebenen Staaten

☒ Weitere Anmelder und/oder (weitere) Erfinder sind auf einem Fortsetzungsblatt angegeben.

Feld Nr. IV ANWALT ODER GEMEINSAMER VERTRETER; ZUSTELLANSCHRIFT

Die folgende Person wird hiermit bestellt/ist bestellt worden, um für den (die) Anmelder vor den zuständigen internationalen Behörden in folgender Eigenschaft zu handeln als: ☐ Anwalt ☐ gemeinsamer Vertreter

Name und Anschrift (Familienname, Vorname; bei juristischen Personen vollständige amtliche Bezeichnung. Bei der Anschrift sind die Postleitzahl und der Name des Staats anzugeben)

Telefonnr.:

Telefaxnr.:

Fernschreibnr.:

☐ Dieses Kästchen ist anzukreuzen, wenn kein Anwalt oder gemeinsamer Vertreter bestellt ist und statt dessen im obigen Feld eine spezielle Zustellanschrift angegeben ist.

EM36046654905

Fortsetzung von Feld Nr. III WEITERER ANMELDER UND/ODER (WEITERE) ERFINDER

Wird keines der folgenden Felder benutzt, so ist dieses Blatt dem Antrag nicht beizufügen.

Name und Anschrift (Familiennamen, Vorname; bei juristischen Personen vollständige amtliche Bezeichnung. Bei der Anschrift sind die Postleitzahl und der Name des Staats anzugeben. Der in diesem Feld in der Anschrift angegebene Staat ist der Staat des Sitzes oder Wohnsitzes des Anmelders, sofern nachstehend kein Staat des Sitzes oder Wohnsitzes angegeben ist.)

LINDEMANN, Gert
Lerchenweg 10
72805 Lichtenstein
DE

Diese Person ist

☐ nur Anmelder☒ Anmelder und Erfinder☐ nur Erfinder (Wird dieses Kästchen angekreuzt, so sind die nachstehenden Angaben nicht nötig.)

Staatsangehörigkeit (Staat): DE

Sitz oder Wohnsitz (Staat): DE

Diese Person ist Anmelder für folgende Staaten:

☐ alle Bestimmungsstaaten☐ alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme der Vereinigten Staaten☒ nur die Vereinigten Staaten von Amerika☐ die im Zusatzfeld angegebenen Staaten

Name und Anschrift (Familiennamen, Vorname; bei juristischen Personen vollständige amtliche Bezeichnung. Bei der Anschrift sind die Postleitzahl und der Name des Staats anzugeben. Der in diesem Feld in der Anschrift angegebene Staat ist der Staat des Sitzes oder Wohnsitzes des Anmelders, sofern nachstehend kein Staat des Sitzes oder Wohnsitzes angegeben ist.)

LINDNER, Friederike
Immelmannstr. 24
70839 Gerlingen
DE

Diese Person ist

☐ nur Anmelder☒ Anmelder und Erfinder☐ nur Erfinder (Wird dieses Kästchen angekreuzt, so sind die nachstehenden Angaben nicht nötig.)

Staatsangehörigkeit (Staat): DE

Sitz oder Wohnsitz (Staat): DE

Diese Person ist Anmelder für folgende Staaten:

☐ alle Bestimmungsstaaten☐ alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme der Vereinigten Staaten☒ nur die Vereinigten Staaten von Amerika☐ die im Zusatzfeld angegebenen Staaten

Name und Anschrift (Familiennamen, Vorname; bei juristischen Personen vollständige amtliche Bezeichnung. Bei der Anschrift sind die Postleitzahl und der Name des Staats anzugeben. Der in diesem Feld in der Anschrift angegebene Staat ist der Staat des Sitzes oder Wohnsitzes des Anmelders, sofern nachstehend kein Staat des Sitzes oder Wohnsitzes angegeben ist.)

WIEDMAIER, Matthias
Buechenbronnerstr. 34
73061 Ebersbach
DE

Diese Person ist

☐ nur Anmelder☒ Anmelder und Erfinder☐ nur Erfinder (Wird dieses Kästchen angekreuzt, so sind die nachstehenden Angaben nicht nötig.)

Staatsangehörigkeit (Staat): DE

Sitz oder Wohnsitz (Staat): DE

Diese Person ist Anmelder für folgende Staaten:

☐ alle Bestimmungsstaaten☐ alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme der Vereinigten Staaten☒ nur die Vereinigten Staaten von Amerika☐ die im Zusatzfeld angegebenen Staaten

Name und Anschrift (Familiennamen, Vorname; bei juristischen Personen vollständige amtliche Bezeichnung. Bei der Anschrift sind die Postleitzahl und der Name des Staats anzugeben. Der in diesem Feld in der Anschrift angegebene Staat ist der Staat des Sitzes oder Wohnsitzes des Anmelders, sofern nachstehend kein Staat des Sitzes oder Wohnsitzes angegeben ist.)

Diese Person ist

☐ nur Anmelder☐ Anmelder und Erfinder☐ nur Erfinder (Wird dieses Kästchen angekreuzt, so sind die nachstehenden Angaben nicht nötig.)

Staatsangehörigkeit (Staat):

Sitz oder Wohnsitz (Staat):

Diese Person ist Anmelder für folgende Staaten:

☐ alle Bestimmungsstaaten☐ alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme der Vereinigten Staaten☐ nur die Vereinigten Staaten von Amerika☐ die im Zusatzfeld angegebenen Staaten

☐ Weitere Anmelder und/oder (weitere) Erfinder sind auf einem Fortsetzungsblatt angegeben.

Formblatt PCT/RO/101 (Fortsetzungsblatt)

Siehe Anmerkungen zu diesem Antragsformular

Feld Nr. V BESTIMMUNG VON STAATEN

Die folgenden Bestimmungen nach Regel 4.9 Absatz a werden hiermit vorgenommen:

Regionales Patent

- ☐ AP ARIPO-Patent: GH Ghana, GM Gambia, KE Kenia, LS Lesotho, MW Malawi, SD Sudan, SL Sierra Leone, SZ Swasiland, UG Uganda, ZW Simbabwe und jeder weitere Staat, der Vertragsstaat des Harare-Protokolls und des PCT ist
- ☐ EA Eurasisches Patent: AM Armenien, AZ Aserbaidshan, BY Belarus, KG Kirgisistan, KZ Kasachstan, MD Republik Moldau, RU Russische Föderation, TJ Tadschikistan, TM Turkmenistan und jeder weitere Staat, der Vertragsstaat des Eurasischen Patentübereinkommens und des PCT ist
- ☒ EP Europäisches Patent: AT Österreich, BE Belgien, CH und LI Schweiz und Liechtenstein, CY Zypern, DE Deutschland, DK Dänemark, ES Spanien, FI Finnland, FR Frankreich, GB Vereinigtes Königreich, GR Griechenland, IE Irland, IT Italien, LU Luxemburg, MC Monaco, NL Niederlande, PT Portugal, SE Schweden und jeder weitere Staat, der Vertragsstaat des Europäischen Patentübereinkommens und des PCT ist.
- ☐ OA OAPI-Patent: BF Burkina Faso, BJ Benin, CF Zentralafrikanische Republik, CG Kongo, CI Côte d'Ivoire, CM Kamerun, GA Gabun, GN Guinea, GW Guinea-Bissau, ML Mali, MR Mauretanien, NE Niger, SN Senegal, TD Tschad, TG Togo und jeder weitere Staat, der Vertragsstaat der OAPI und des PCT ist.....

Nationales Patent (falls eine andere Schutzrechtsart oder ein sonstiges Verfahren gewünscht wird, bitte auf der gepunkteten Linie angeben):

- | | |
|--|--|
| <input type="checkbox"/> AE Vereinigte Arabische Emirate | <input type="checkbox"/> LR Liberia..... |
| <input type="checkbox"/> AL Albanien | <input type="checkbox"/> LS Lesotho..... |
| <input type="checkbox"/> AM Armenien..... | <input type="checkbox"/> LT Litauen..... |
| <input type="checkbox"/> AT Österreich..... | <input type="checkbox"/> LU Luxemburg..... |
| <input type="checkbox"/> AU Australien..... | <input type="checkbox"/> LV Lettland..... |
| <input type="checkbox"/> AZ Aserbaidshan | <input type="checkbox"/> MD Republik Moldau..... |
| <input type="checkbox"/> BA Bosnien-Herzegowina..... | <input type="checkbox"/> MG Madagaskar..... |
| <input type="checkbox"/> BB Barbados | <input type="checkbox"/> MK Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien..... |
| <input type="checkbox"/> BG Bulgarien..... | <input type="checkbox"/> MN Mongolei..... |
| <input type="checkbox"/> BR Brasilien..... | <input type="checkbox"/> MW Malawi..... |
| <input type="checkbox"/> BY Belarus..... | <input type="checkbox"/> MX Mexiko..... |
| <input type="checkbox"/> CA Kanada | <input type="checkbox"/> NO Norwegen..... |
| <input type="checkbox"/> CH und LI Schweiz und Liechtenstein | <input type="checkbox"/> NZ Neuseeland..... |
| <input type="checkbox"/> CN China..... | <input type="checkbox"/> PL Polen..... |
| <input type="checkbox"/> CU Kuba..... | <input type="checkbox"/> PT Portugal..... |
| <input type="checkbox"/> CZ Tschechische Republik..... | <input type="checkbox"/> RO Rumänien..... |
| <input type="checkbox"/> DE Deutschland..... | <input type="checkbox"/> RU Russische Föderation..... |
| <input type="checkbox"/> DK Dänemark..... | <input type="checkbox"/> SD Sudan..... |
| <input type="checkbox"/> EE Estland..... | <input type="checkbox"/> SE Schweden..... |
| <input type="checkbox"/> ES Spanien..... | <input type="checkbox"/> SG Singapur..... |
| <input type="checkbox"/> FI Finnland..... | <input type="checkbox"/> SI Slowenien..... |
| <input type="checkbox"/> GB Vereinigtes Königreich | <input type="checkbox"/> SK Slowakei..... |
| <input type="checkbox"/> GD Grenada..... | <input type="checkbox"/> SL Sierra Leone..... |
| <input type="checkbox"/> GE Georgien..... | <input type="checkbox"/> TJ Tadschikistan..... |
| <input type="checkbox"/> GH Ghana..... | <input type="checkbox"/> TM Turkmenistan..... |
| <input type="checkbox"/> GM Gambia | <input type="checkbox"/> TR Türkei..... |
| <input type="checkbox"/> HR Kroatien | <input type="checkbox"/> TT Trinidad und Tobago..... |
| <input type="checkbox"/> HU Ungarn..... | <input type="checkbox"/> UA Ukraine..... |
| <input type="checkbox"/> ID Indonesien..... | <input checked="" type="checkbox"/> US Vereinigte Staaten von Amerika..... |
| <input type="checkbox"/> IL Israel..... | <input type="checkbox"/> UZ Usbekistan..... |
| <input checked="" type="checkbox"/> JP Japan..... | <input type="checkbox"/> VN Vietnam..... |
| <input type="checkbox"/> KE Kenia..... | <input type="checkbox"/> YU Jugoslawien..... |
| <input type="checkbox"/> KG Kirgisistan..... | <input type="checkbox"/> ZA Südafrika..... |
| <input type="checkbox"/> KP Demokratische Volksrepublik Korea..... | <input type="checkbox"/> ZW Simbabwe..... |
| <input type="checkbox"/> KR Republik Korea..... | |
| <input type="checkbox"/> KZ Kasachstan..... | |
| <input type="checkbox"/> LC Saint Lucia | |
| <input type="checkbox"/> LK Sri Lanka | |

Kästchen für die Bestimmung von Staaten, die dem PCT nach der Veröffentlichung dieses Formblatts beigetreten sind:

Erklärung bzgl. vorsorglicher Bestimmungen: zusätzlich zu den oben genannten Bestimmungen nimmt der Anmelder nach Regel 4.9 Absatz b auch alle anderen nach dem PCT zulässigen Bestimmungen vor mit Ausnahme der im Zusatzfeld genannten Bestimmungen, die von dieser Erklärung ausgenommen sind. Der Anmelder erklärt, daß diese zusätzlichen Bestimmungen unter dem Vorbehalt einer Bestätigung stehen und jede zusätzliche Bestimmung, die vor Ablauf von 15 Monaten ab dem Prioritätsdatum nicht bestätigt wurde, nach Ablauf dieser Frist als vom Anmelder zurückgenommen gilt. (Die Bestätigung einer Bestimmung erfolgt durch die Einreichung einer Mitteilung, in der diese Bestimmung angegeben wird, und die Zahlung der Bestimmungs- und der Bestätigungsgebühr. Die Bestätigung muß beim Anmeldeamt innerhalb der Frist von 15 Monaten eingehen.)

Feld Nr. VI PRIORITYSAUSBUCH		<input type="checkbox"/> Weitere Prioritätsansprüche sind im Zusatzfeld angegeben Ist die Anmeldung eine:		
Anmeldedatum der früheren Anmeldung (Tag/Monat/Jahr)	Zeichen der früheren Anmeldung	nationale Anmeldung: Staat	regionale Anmeldung: * regionales Amt	internationale Anmeldung: Anmeldeamt
Zeile (1) 2. Oktober 1998 (02.10.1998)	198 45 532.1	Bundesrepublik Deutschland		
Zeile (2)				
Zeile (3)				

☒ Das Anmeldeamt wird ersucht, eine beglaubigte Abschrift der oben in Zeile(n) (1) bezeichneten früheren Anmeldung(en) zu erstellen und dem Internationalen Büro zu übermitteln.

Feld Nr. VII INTERNATIONALE RECHERCHENBEHÖRDE

Wahl der Internationalen Recherchenbehörde (ISA)
(falls zwei oder mehr als zwei Internationale Recherchenbehörden für die Ausführung der internationalen Recherche zuständig sind, geben Sie die von Ihnen gewählte Behörde an: (der: Zweibuchstaben-Code kann benützt werden)
ISA/

Antrag auf Nutzung der Ergebnisse einer früheren Recherche: Bezugnahme auf diese frühere Recherche (falls eine frühere Recherche bei der internationalen Recherchenbehörde beantragt oder von ihr durchgeführt worden ist):
Datum (Tag/Monat/Jahr): Aktenzeichen Staat (oder regionales Amt)

Feld Nr. VIII KONTROLLISTE; EINREICHUNGSSPRACHE

Diese internationale Anmeldung enthält die folgende Anzahl von Blättern:

Antrag : 4 Blätter
Beschreibung (ohne Sequenzprotokollteil) : 7 Blätter
Ansprüche : 4 Blätter
Zusammenfassung : 1 Blätter
Zeichnungen : 1 Blätter
Sequenzprotokollteil der Beschreibung : Blätter
Blattzahl insgesamt : 17 Blätter

Dieser internationalen Anmeldung liegen die nachstehend angekreuzten Unterlagen bei:

1. ☒ Blatt für die Gebührenberechnung
2. ☐ Gesonderte unterzeichnete Vollmacht
3. ☐ Kopien der allgemeinen Vollmacht; Aktenzeichen (falls vorhanden)
4. ☐ Begründung für das Fehlen einer Unterschrift
5. ☐ Prioritätsbeleg(e), in Feld VI durch folgende Zeilennummer gekennzeichnet:
6. ☐ Übersetzung der internationalen Anmeldung in die folgende Sprache:
7. ☐ Gesonderte Angaben zu hinterlegten Mikroorganismen oder biologischem Material
8. ☐ Sequenzprotokolle für Nucleotide und/oder Aminosäuren (Diskette)
9. ☐ Sonstige (einzeln aufführen):

Abbildung der Zeichnungen, die mit der Zusammenfassung veröffentlicht werden soll (Nr.): 1

Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht wird: Deutsch

Feld Nr. IX UNTERSCHRIFT DES ANMELDERS ODER DES ANWALTS

Der Name jeder unterzeichnenden Person ist neben der Unterschrift zu wiederholen, und es ist anzugeben, sofern sich dies nicht eindeutig aus dem Antrag ergibt, in welcher Eigenschaft die Person unterzeichnet.

ROBERT BOSCH GMBH

Nr. 19/95 AV

Guenter Knoll

Gert Lindemann

Brix

Friederike Lindner

Matthias Wiedmaier

Vom Anmeldeamt auszufüllen		2. Zeichnungen
1. Datum des tatsächlichen Eingangs dieser internationalen Anmeldung		<input type="checkbox"/> eingegangen:
3. Geändertes Eingangsdatum aufgrund nachträglich, jedoch fristgerecht eingegangener Unterlagen oder Zeichnungen zur Vervollständigung dieser internationalen Anmeldung:		<input type="checkbox"/> nicht eingegangen:
4. Datum des fristgerechten Eingangs der angeforderten Richtigstellung nach Artikel 11(2) PCT:		
5. Vom Anmelder benannte Internationale Recherchenbehörde: ISA/	6. Übermittlung des Recherchenexemplars bis zur Zahlung der Recherchegebühr aufgeschoben <input type="checkbox"/>	

Vom Internationalen Büro auszufüllen
Datum des Eingangs des Aktenexemplars beim Internationalen Büro:

PCT

WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM.
Internationales BüroINTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

(51) Internationale Patentklassifikation 7 :

C04B 35/58, 35/593

A1

(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 00/20352

(43) Internationales

Veröffentlichungsdatum:

13. April 2000 (13.04.00)

(21) Internationales Aktenzeichen:

PCT/DE99/03155

(22) Internationales Anmeldedatum: 1. Oktober 1999 (01.10.99)

(30) Prioritätsdaten:

198 45 532.1

2. Oktober 1998 (02.10.98)

DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): ROBERT BOSCH GMBH [DE/DE]; Postfach 30 02 20, D-70442 Stuttgart (DE).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): KNOLL, Guenter [DE/DE]; Brahmsweg 33, D-70195 Stuttgart (DE). LINDEMANN, Gert [DE/DE]; Lerchenweg 10, D-72805 Lichtenstein (DE). LINDNER, Friederike [DE/DE]; Immelmannstrasse 24, D-70839 Gerlingen (DE). WIEDMAIER, Matthias [DE/DE]; Buechenbronnerstrasse 34, D-73061 Ebersbach (DE).

(81) Bestimmungsstaaten: JP, US, europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).

Veröffentlicht

Mit internationalem Recherchenbericht.

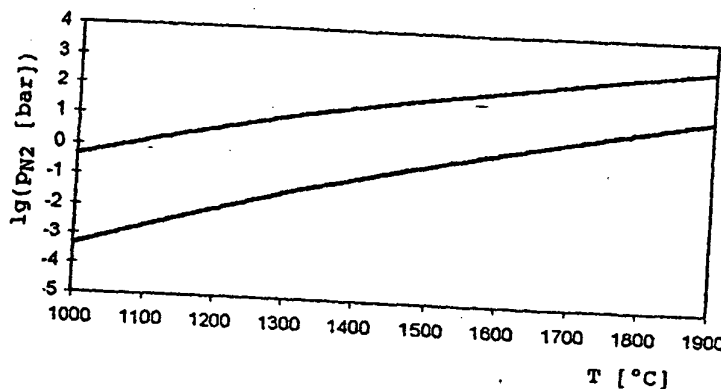
Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche zugelassenen Frist; Veröffentlichung wird wiederholt falls Änderungen eintreffen.

(54) Title: METHOD FOR PRODUCING COMPOSITE MATERIALS AND EXAMPLES OF SUCH COMPOSITE MATERIALS

(54) Bezeichnung: VERFAHREN ZUR HERSTELLUNG VON KOMPOSITWERKSTOFFEN UND VERTRETER SOLCHER KOMPOSITWERKSTOFFE

(57) Abstract

The aim of the invention is to economically produce composite materials which contain silicon nitride and metal silicide and which comprise determined electrical properties while using few pieces of equipment. According to the invention, it should be possible to produce shaped bodies with close to final contours from the composite materials before sintering and to provide examples of such composite materials. To these ends, the invention provides a method in which a starting material containing Si_3N_4 and metal silicide is subjected to gas pressure sintering in an atmosphere containing nitrogen. In addition, Me_5Si_3 is introduced as metal silicide into the starting material. The nitrogen partial pressure is determined according to the sintering temperature such that Si_3N_4 remains stabile at the lower limit of the applicable area and Me_5Si_3 remains stabile at the upper limit. The invention also provides a composite material which contains silicon and whose silicon-containing constituents are comprised of Si_3N_4 and of a metal silicide, whereby the metal silicide is selected from the group Nb_5Si_3 , V_5Si_3 , Ta_5Si_3 and W_5Si_3 .



(57) Zusammenfassung

Um Siliciumnitrid und Metallsilicid enthaltende Kompositwerkstoffe mit festgelegten elektrischen Eigenschaften mit geringem apparativem Aufwand und energiesparend herzustellen, wobei es möglich sein soll, Formkörper aus den Kompositwerkstoffen vor dem Sintern endkonturrah zu erzeugen, und Vertreter solcher Kompositwerkstoffe anzugeben, wird ein Verfahren, bei dem ein Si_3N_4 und Metallsilicid enthaltendes Ausgangsmaterial dem Gasdrucksintern in einer stickstoffhaltigen Atmosphäre unterworfen wird, bei dem als Metallsilicid Me_5Si_3 in das Ausgangsmaterial eingebracht wird, bei dem der Stickstoffpartialdruck in Abhängigkeit von der Sintertemperatur derart festgelegt wird, dass an der unteren Grenze des anwendbaren Bereichs Si_3N_4 noch stabil ist und an der oberen Grenze Me_5Si_3 , und ein siliciumhaltiger Kompositwerkstoff vorgeschlagen, dessen siliciumhaltige Komponenten aus Si_3N_4 und einem Metallsilicid bestehen, wobei das Metallsilicid aus der Gruppe Nb_5Si_3 , V_5Si_3 , Ta_5Si_3 und W_5Si_3 ausgewählt ist.

LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
AZ	Aserbaidschan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland	ML	Mali	TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	MN	Mongolei	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MR	Mauretanien	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MW	Malawi	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MX	Mexiko	US	Vereinigte Staaten von Amerika
CA	Kanada	IT	Italien	NE	Niger	UZ	Usbekistan
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NL	Niederlande	VN	Vietnam
CG	Kongo	KE	Kenia	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NZ	Neuseeland	ZW	Zimbabwe
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	PL	Polen		
CM	Kamerun	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CN	China	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CU	Kuba	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
CZ	Tschechische Republik	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DE	Deutschland	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
DK	Dänemark	LR	Liberia	SG	Singapur		
EE	Estland						

Verfahren zur Herstellung von Kompositwerkstoffen und Vertreter
solcher Kompositwerkstoffe

Stand der Technik

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung eines Kompositwerkstoffs aus Siliciumnitrid und ein Metallsilicid enthaltendem Ausgangsmaterial durch Gasdrucksintern in einer stickstoffhaltigen Atmosphäre und einen siliciumhaltigen Kompositwerkstoff, dessen siliciumhaltige Komponenten aus Si_3N_4 und einem Metallsilicid bestehen.

Kompositwerkstoffe, die Siliciumnitrid und Metallsilicid enthalten, und Verfahren zu ihrer Herstellung sind bekannt. Die Herstellung solcher Werkstoffe durch einaxiales Heißpressen ist in den DE 37 34 274 C2 und DE 36 06 403 C2, wobei das Ausgangsmaterial Si_3N_4 und als Silicid MoSi_2 enthält, und in der EP 0335 382 A1 beschrieben, wobei das Ausgangsmaterial Si_3N_4 , Mo_5Si_3 als Silicid und Kohlenstoff enthält und der hergestellte Werkstoff als Metallsilicid $\text{Mo}_5\text{Si}_3\text{C}$ oder genauer $\text{Mo}_{5-x}\text{Si}_3\text{C}_{1-y}$ ($0 \leq x \leq 2$; $0 \leq y \leq 1$) enthält. Die elektrischen Eigenschaften der so hergestellten Werkstoffe lassen sich gezielt einstellen. Das Verfahren ist apparativ und bezüglich des Energieverbrauchs aufwendig. Komplexere geometrische Strukturen können bei Anwendung des Verfahrens nur mittels einer teuren Hartbearbeitung hergestellt werden.

Die Herstellung hochwarmfester Siliciumnitrid-Kompositwerkstoffe, die eine Verstärkungskomponente aus Me_5Si_3 und darüber hinaus MeSi_2 oder MeSi und Silicide anderer Stöchiometrien

enthalten, ist in der DE 195 00 832 A1 bzw. der EP 0 721 925 A2 offenbart, wobei Me für Metall steht. Ins Ausgangsmaterial werden als Metallsilicid MeSi_2 und Me_5Si_3 oder nur MeSi_2 gemischt. Die Metalle sind bevorzugt aus der Gruppe Molybdän, Wolfram, Chrom, Tantal, Niob, Mangan und Vanadium ausgewählt. Das Sintern erfolgt durch Gasdrucksintern (bei N_2 -Drücken von 100bar), was die endkonturnahe Herstellung von Formkörpern durch Keramikspritzguß oder Pressen mit nachfolgender Grünbearbeitung ermöglicht, oder Heißpressen. Spezielle elektrische Eigenschaften können nicht eingestellt werden.

Die Erfindung und ihre Vorteile

Es ist die Aufgabe der Erfindung, ein apparativ einfaches und energiesparendes Verfahren zur Herstellung von Siliciumnitrid und Metallsilicid enthaltenden Kompositwerkstoffen mit festgelegten elektrischen Eigenschaften, welches es gestattet, Formkörper aus dem Kompositwerkstoff vor dem Sintern endkonturnah herzustellen, und Vertreter solcher Kompositwerkstoffe anzugeben.

Diese Aufgabe wird mit einem Verfahren der eingangs genannten Art, bei dem Me_5Si_3 als das Metallsilicid in das Ausgangsmaterial eingebracht wird, wobei der Stickstoffpartialdruck in Abhängigkeit von der Sintertemperatur derart festgelegt wird, daß an der unteren Grenze des anwendbaren Bereichs Si_3N_4 noch thermodynamisch stabil ist und an der oberen Grenze Me_5Si_3 , und einem Kompositwerkstoff der eingangs genannten Art gelöst, bei dem das Metallsilicid aus der Gruppe Nb_5Si_3 , V_5Si_3 , Ta_5Si_3 und W_5Si_3 ausgewählt ist.

Die Erfinder fanden einen Weg, die Vorteile des Gasdrucksintervfahrens auszunutzen, und trotzdem Kompositwerkstoffe mit festgelegten elektrischen Eigenschaften herzustellen. Sie stellten fest, daß eine definierte Einstellung der elektrischen Eigenschaften bei Anwendung von N_2 -Partialdrücken außerhalb

BEST AVAILABLE COPY

eines bestimmten Druckbereichs nicht möglich ist. Bei Versuchen fanden sie einen Bereich der N_2 -Partialdrücke bei dem verhindert werden kann, daß im fertigen Kompositwerkstoff außer Si_3N_4 und Me_5Si_3 noch andere Silicium enthaltende Komponenten enthalten sind. Auf diese Weise gelang es ihnen, Kompositwerkstoffe mit festgelegten elektrischen Eigenschaften herzustellen. Das Gasdrucksintervallverfahren kommt im Vergleich zum Heißpressen mit einer wesentlich einfacheren Sintervorrichtung aus. Mit dem erfindungsgemäßen Verfahren lassen sich dichte hochfeste Werkstoffe herstellen. Gegenüber $MeSi_2$ enthaltenden Werkstoffen ist bei Me_5Si_3 enthaltenden die Temperaturabhängigkeit der elektrischen Leitfähigkeit sehr gering.

Es ist unkritisch, wenn das Verfahren so durchgeführt wird, daß das Metallsilicid im Kompositwerkstoff einen Kohlenstoffanteil (bevorzugt zwischen etwa 0,3 und etwa 0,6 Maß bezogen auf den Kompositwerkstoff) aufweist, d.h. als $Me_5Si_3(C)$ vorliegt.

Weitere vorteilhafte Ausgestaltungen des erfindungsgemäßen Verfahrens und der erfindungsgemäßen Kompositwerkstoffe sind in den Unteransprüchen aufgeführt.

Die Zeichnung

Im folgenden wird die Erfindung anhand von durch Zeichnungen erläuterten Ausführungsbeispielen detailliert beschrieben. Es zeigen

Fig. 1 in einem Diagramm aufgetragen über der Sintertemperatur den Logarithmus der unteren und oberen Grenzwerte der beim erfindungsgemäßen Verfahren anwendbaren N_2 -Partialdrücke für die Herstellung eines Mo_5Si_3 enthaltenden Kompositwerkstoffs und

Fig. 2 dasselbe wie die Fig. 1 jedoch für die Herstellung eines Nb_5Si_3 enthaltenden Kompositwerkstoffs.

Die im folgenden beschriebenen Ausführungsbeispiele des erfindungsgemäßen Verfahrens sind zwar besonders vorteilhaft, es sei aber klargestellt, daß sie nur beispielhaft genannt sind, und daß mannigfaltige Abweichungen von ihnen im Rahmen der Ansprüche möglich sind.

Zur Herstellung der Kompositwerkstoffe wird zunächst ein vorkonditioniertes Si_3N_4 -Pulver mit Sinteradditiven, wie Al_2O_3 , Y_2O_3 o.ä., die - bezogen auf den gesamten anorganischen Anteil - weniger als etwa 10 Ma% ausmachen, wobei Ma% für Massenprozent steht, Me_5Si_3 in zweckentsprechenden Masseanteilen und gegebenenfalls organischen Press- und/oder Bindehilfsmitteln unter Zufügung eines organischen Lösungsmittels - bevorzugt - in einer Attritormühle gemischt. Die attritierte Suspension wird beispielsweise in einem Rotationsverdampfer getrocknet. Aus dem getrockneten Pulver können durch kaltisostatisches Pressen bei Drücken zwischen etwa 150 und etwa 250 MPa Formkörper hergestellt werden, die nach dem Preßvorgang durch Grünbearbeitung ihre endgültige Form erhalten können. Weitere Möglichkeiten der Verarbeitung stellen nach dem Einbringen entsprechender Bindemittel der Keramikspritzguß (CIM) oder die Extrusion dar. Zur Entbinderung und/oder zum Vorsintern werden die Formkörper bei etwa 600°C unter einem Druck von 1 bar in einer Inertgasatmosphäre etwa zwei Stunden lang behandelt, wobei die organischen Bestandteile praktisch rückstandslos entfernt werden. Es folgt dann die Hauptsinterung bevorzugt in einem Gasdrucksinterofen bei einer Temperatur im Bereich zwischen etwa 1700°C und etwa 1900°C und bevorzugt zwischen etwa 1800°C und etwa 1900°C unter einem definierten N_2 -Partialdruck (Gesamtdruck zwischen etwa 0,1 MPa und etwa 10 MPa), der so festgelegt wird, daß die Si_3N_4 -Phase und die Me_5Si_3 - bzw. $\text{Me}_5\text{Si}_3(\text{C})$ -Phase während der Sinterverdichtung im thermodynamischen Gleichgewicht vorliegen, d.h. keine chemischen Reaktionen eingehen. Der bei einer bestimmten Temperatur brauchbare Bereich des N_2 -Partialdrucks hängt vom Metallsilicid ab. In den Diagrammen der Fig. 1 und 2 sind die

Bereiche der brauchbaren, in bar gemessenen N_2 -Partialdrücke (P_{N_2}) für Mo_5Si_3 bzw. Nb_5Si_3 enthaltende Mischungen als $\log(P_{N_2} [\text{bar}])$ in Abhängigkeit von der Temperatur aufgetragen. Die jeweils obere und untere begrenzende Kurve genügen für Mo-haltige Mischungen den Gleichungen

$$Y_1 = 5,3071 \cdot \ln(T) - 37,014$$

bzw.

$$Y_2 = 7,3494 \cdot \ln(T) - 54,124$$

und für Nb-haltige Mischungen den Gleichungen

$$Y_1 = 7,8968 \cdot \ln(T) - 58,8$$

bzw.

$$Y_2 = 8,2598 \cdot \ln(T) - 62,064,$$

wobei Y_1 und Y_2 für $\lg(P_{N_2} [\text{bar}])$ -Werte stehen. Unterhalb des begrenzten Bereichs findet eine Reaktion des Si_3N_4 mit Me_5Si_3 statt. Oberhalb des begrenzten Bereichs reagiert das Me_5Si_3 mit Stickstoff. Ermittelt wurden die Kurven in Reihenversuchen, indem bei einer festgelegten Temperatur zwischen etwa 1700 und etwa 1900°C die N_2 -Partialdrücke ermittelt wurden, bei denen das Me_5Si_3 und das Si_3N_4 thermodynamisch stabil vorliegen. Das Kriterium, daß keine Reaktion stattfand, ist jeweils, daß im Röntgendiffraktogramm des gesinterten Werkstoffs nur die gewünschten siliciumhaltigen Phasen gefunden werden. Basierend auf diesen Werten, bekannten Daten, wie Bildungsenthalpien, und thermodynamischen Funktionen wurden dann die o.g. Gleichungen ermittelt. Das Sintern dauert etwa zwei bis etwa fünf Stunden.

Die Einstellung des spezifischen elektrischen Widerstands der erfindungsgemäß hergestellten Kompositwerkstoffe erfolgt über die Wahl des Metalls im Silicid und den Anteil und die Verteilung des Silicids im Kompositwerkstoff. Außerhalb des jeweiligen Percolationsbereichs können mit $Nb_5Si_3(C)$ enthaltenden Werkstoffen spezifische elektrische Widerstände zwischen etwa $1,7 \cdot 10^{-4} \Omega \text{cm}$ und etwa $1 \cdot 10^{12} \Omega \text{cm}$ und mit $Mo_5Si_3(C)$ enthaltenden Werkstoffen zwischen etwa $1 \cdot 10^{-5} \Omega \text{cm}$ und etwa $1 \cdot 10^{12} \Omega \text{cm}$ reproduzierbar eingestellt werden. Gemessen wird der spezifische Widerstand mittels der Vierspitzenmethode.

Mittels qualitativer und quantitativer chemischer und physikalisch-chemischer Analysen und der röntgenographischen Phasenanalyse kann nachgewiesen werden, daß die gesinterten Werkstoffe - abgesehen vom Kohlenstoffgehalt und ohne Berücksichtigung der organischen Bestandteile - dieselbe Zusammensetzung haben wie die Mischung, von der bei der Herstellung ausgegangen wurde. Der Kohlenstoff in dem Metallsilicid ist bei Sinterung in einem Graphitofen bevorzugt mit einem auf den Kompositwerkstoff bezogenen Anteil zwischen etwa 0,3 und etwa 0,6 Ma% und besonders bevorzugt von etwa 0,5 Ma% enthalten. Die Raumtemperaturfestigkeiten der Kompositwerkstoffe liegen nicht unter 500 MPa.

Me kann außer für Niob und Molybdän mit vergleichbaren Erfolgen für alle Metalle der 5. und 6. Nebengruppe des Periodensystems, insbesondere für Vanadium, Tantal, Chrom und Wolfram, stehen.

Das erfindungsgemäße Verfahren wird im folgenden anhand von zwei speziellen Beispielen noch genauer beschrieben.

Beispiel 1

Das Ausgangsmaterial wurde aus 36 Ma% Si_3N_4 , 1,7 Ma% Al_2O_3 , 2,38 Ma% Y_2O_3 , 60 Nb₅Si₃ Ma% und üblichen Preß- und Bindehilfsmitteln gemischt. Die mittlere Korngröße des Si_3N_4 war 0,7 μm und die des Nb₅Si₃ 7 μm . Nach der kaltisostatischen Verdichtung bei 200 MPa erfolgte bei bis zu 600°C eine Vorsinterung unter einem Inertgas, wobei Argon verwendet wurde (es hätte auch Stickstoff eingesetzt werden können). Anschließend wurde bei einem N₂-Partialdruck von 0,5 MPa (Gesamtdruck 1 MPa) und 1800°C in einem Graphitofen gesintert.

Der erhaltene Kompositwerkstoff hatte eine Dichte von 97% der Werkstoffdichte. Die nach dem Sintern durchgeführte röntgenographische Phasenanalyse ergab als siliciumhaltige Phasen ausschließlich Si_3N_4 und Nb₅Si₃(C). Als spezifischer

elektrischer Widerstand wurde $3.6 \cdot 10^{-3} \Omega \text{cm}$ bei 25°C ermittelt. Der Temperaturkoeffizient des spezifischen elektrischen Widerstands betrug $2 \cdot 10^{-4} \text{K}^{-1}$.

Beispiel 2

Außer daß die anorganischen Bestandteile des Ausgangsmaterials aus 54 Ma% Si_3N_4 , 2,6 Ma% Al_2O_3 , 3,4 Ma% Y_2O_3 , 40 Nb₅Si₃ Ma% bestanden, wurde das Verfahren in derselben Weise wie im Beispiel 1 durchgeführt.

Gemäß den Untersuchungen des gesinterten Werkstoffs betrug die erzielte Werkstoffdichte ebenfalls 97%, ergab die röntgenographische Phasenanalyse als siliciumhaltige Phasen ausschließlich Si_3N_4 und Nb₅Si₃(C), als spezifischer elektrischer Widerstand wurde $2 \cdot 10^2 \Omega \text{cm}$ bei 25°C ermittelt.

Ansprüche

1. Verfahren zur Herstellung eines Kompositwerkstoffs aus einem Siliciumnitrid und Metallsilicid enthaltenden Ausgangsmaterial durch Gasdrucksintern in einer stickstoffhaltigen Atmosphäre, dadurch gekennzeichnet, daß als Metallsilicid Me_5Si_3 in das Ausgangsmaterial eingebracht wird, daß der Stickstoffpartialdruck in Abhängigkeit von der Sintertemperatur derart festgelegt wird, daß an der unteren Grenze des anwendbaren Bereichs Si_3N_4 noch stabil ist und an der oberen Grenze Me_5Si_3 .
2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß das Metall im Silicid aus einem Metall der 5. oder 6. Nebengruppe ausgewählt wird.
3. Verfahren nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, daß das Metall aus der Gruppe Mo, Nb, V, Nb, Ta und W ausgewählt wird.
4. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß ein Gewichtsverhältnis von Si_3N_4 : Me_5Si_3 zwischen etwa 20:80 und etwa 80:20 eingestellt wird.
5. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß dem Ausgangsmaterial Sinteradditive zugefügt werden.
6. Verfahren nach Anspruch 5, dadurch gekennzeichnet, daß als Sinteradditive Aluminiumoxid und/oder Yttriumoxid und/oder ähnlich wirkende Materialien zugefügt werden.
7. Verfahren nach Anspruch 5 oder 6, dadurch gekennzeichnet,

daß der Anteil der Sinteradditive in der Ausgangsmischung bei < etwa 10 Gew.-% gehalten wird.

8. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, daß dem Ausgangsmaterial Press- und/oder Bindehilfsmittel zugesetzt werden.

9. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 8, dadurch gekennzeichnet, daß das Ausgangsmaterial gemahlen wird.

10. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 9, dadurch gekennzeichnet, daß das Ausgangsmaterial durch Keramikspritzguß oder isostatisches Kaltpressen und ggf. anschließende Grünbearbeitung in eine gewünschte Form gebracht wird.

11. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 10, dadurch gekennzeichnet, daß das Ausgangsmaterial kaltisostatisch bei einem Druck zwischen etwa 100 und etwa 300 MPa verdichtet wird.

12. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 11, dadurch gekennzeichnet, daß das Ausgangsmaterial vor dem Sintern einem Vorsintern unterworfen wird.

13. Verfahren nach Anspruch 12, dadurch gekennzeichnet, daß bei einer Temperatur zwischen etwa 500 und etwa 700°C vorgesintert wird.

14. Verfahren nach Anspruch 12 oder 13, dadurch gekennzeichnet, daß bei einem Druck zwischen etwa 0,05 und etwa 0,2 MPa vorgesintert wird.

15. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 14, dadurch gekennzeichnet, daß zwischen etwa 1700 und etwa 1900°C gesintert wird.

16. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 15, dadurch

gekennzeichnet, daß bei einem N₂-Partialdruck zwischen etwa 0,5 und etwa 1,0 MPa gesintert wird.

17. Verfahren nach einem der Ansprüche 2 bis 16, dadurch gekennzeichnet, daß als Metall Molybdän verwendet wird, und daß in Abhängigkeit von der Temperatur die obere Grenze des N₂-Partialdrucks (P_{N2}) gemäß der Gleichung

$$Y_1 = 5,3071 \cdot \ln(T) - 37,014$$

und die untere Grenze gemäß der Gleichung

$$Y_2 = 7,3494 \cdot \ln(T) - 54,124$$

festgelegt wird, wobei Y₁ und Y₂ für lg(P_{N2} [bar])-Werte stehen.

18. Verfahren nach einem der Ansprüche 2 bis 15, dadurch gekennzeichnet, daß als Metall Niob verwendet wird, und daß in Abhängigkeit von der Temperatur die obere Grenze des N₂-Partialdrucks (P_{N2}) gemäß der Gleichung

$$Y_1 = 7,8968 \cdot \ln(T) - 58,8$$

und die untere Grenze gemäß der Gleichung

$$Y_2 = 8,2598 \cdot \ln(T) - 62,064$$

festgelegt wird, wobei Y₁ und Y₂ für lg(P_{N2} [bar])-Werte stehen.

19. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 18, dadurch gekennzeichnet, daß das Sintern in einem Gasdrucksinterofen durchgeführt wird.

20. Siliciumhaltiger Kompositwerkstoff, dessen siliciumhaltige Komponenten aus Si₃N₄ und einem Metallsilicid bestehen, dadurch gekennzeichnet, daß das Metallsilicid aus der Gruppe Nb₅Si₃, V₅Si₃, Ta₅Si₃ und W₅Si₃ ausgewählt ist.

21. Kompositwerkstoff nach Anspruch 20, dadurch gekennzeichnet, daß das Metallsilicid Kohlenstoff enthält.

22. Kompositwerkstoff nach Anspruch 21, dadurch gekennzeichnet,

daß das Metallsilicid Kohlenstoff mit einem auf den Kompositwerkstoff bezogenen Anteil von etwa 0,3 bis etwa 0,6 Ma% enthält.

23. Kompositwerkstoff nach einem der Ansprüche 20 bis 22, dadurch gekennzeichnet, daß das Massenverhältnis von $\text{Si}_3\text{N}_4:\text{Me}_5\text{Si}_3$ zwischen etwa 20:80 und etwa 80:20 liegt.

24. Kompositwerkstoff nach einem der Ansprüche 20 bis 23, dadurch gekennzeichnet, daß dem Ausgangsmaterial Sinteradditive zugefügt werden.

25. Kompositwerkstoff nach Anspruch 24, dadurch gekennzeichnet, daß die Sinteradditive aus Aluminiumoxid und/oder Yttriumoxid und/oder ähnlich wirkenden Materialien bestehen.

26. Kompositwerkstoff nach Anspruch 24 oder 25, dadurch gekennzeichnet, daß der Anteil der Sinteradditive in der Ausgangsmischung bei $< \text{etwa } 10 \text{ Gew.}\%$ liegt.

27. Kompositwerkstoff nach einem der Ansprüche 20 bis 26, dadurch gekennzeichnet, daß das Metallsilicid Nb_5Si_3 ist.

1/1

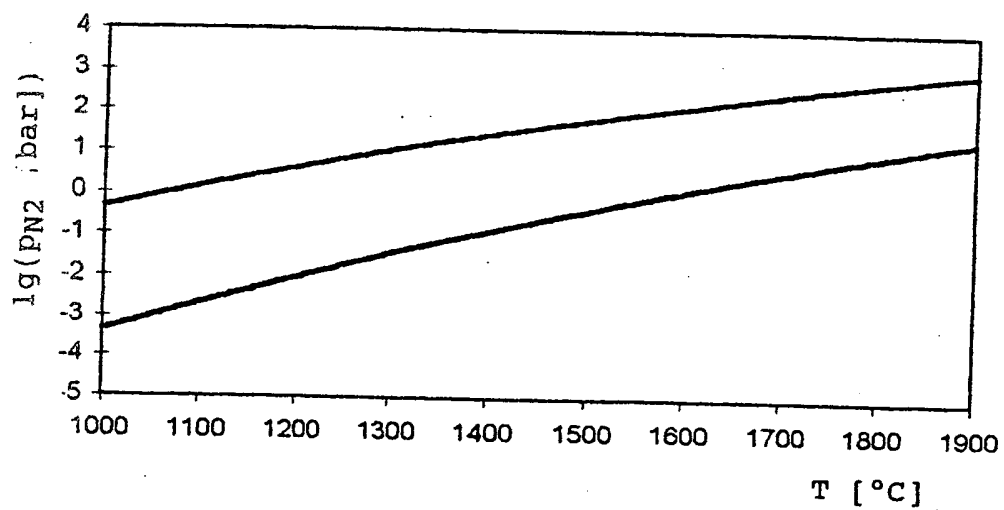


Fig. 1

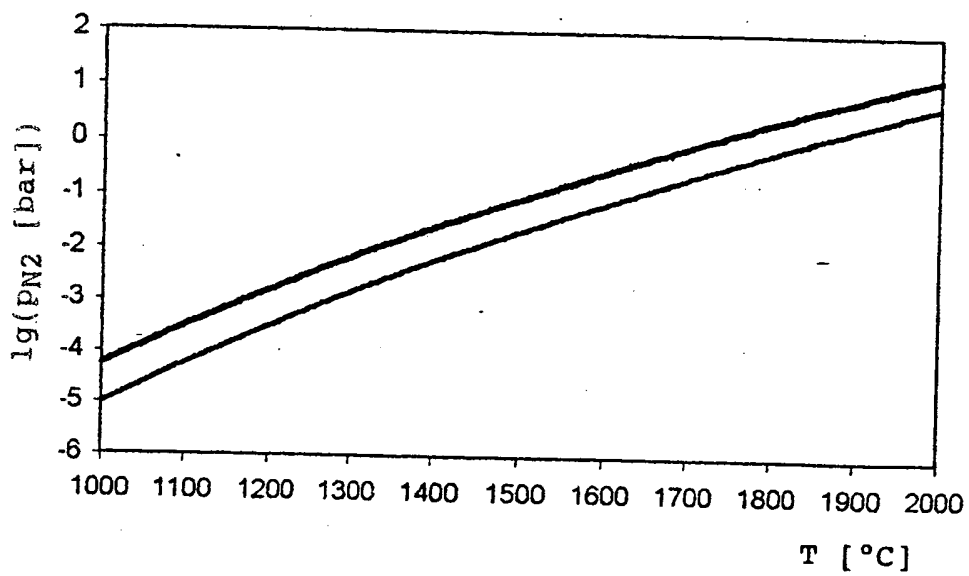


Fig. 2

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/DE 99/03155

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
IPC 7 C04B35/58 C04B35/593

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
IPC 7 C04B F23Q

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	EP 0 520 211 A (HERCULES INC.) 30 December 1992 (1992-12-30) page 2, line 32 -page 3, line 42; examples 1,2	1-12, 15, 17, 19
A	EP 0 335 382 A (NIPPONDENSO CO., LTD.) 4 October 1989 (1989-10-04) cited in the application example 2; table 2	1-27

☐ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents :

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

"Z" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

1 March 2000

Date of mailing of the international search report

08/03/2000

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5618 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Hauck, H

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/DE 99/03155

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 520211	A	30-12-1992	CA 2068979 A	25-12-1992
			DE 69212398 D	29-08-1996
			DE 69212398 T	05-12-1996
			JP 5221728 A	31-08-1993
			US 5439855 A	08-08-1995
EP 335382	A	04-10-1989	DE 68917966 D	13-10-1994
			DE 68917966 T	16-03-1995
			JP 1317170 A	21-12-1989
			JP 2545970 B	23-10-1996
			US 5086210 A	04-02-1992

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/DE 99/03155

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 7 : C04B35/38 C04B35/593
Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 : C04B F23Q

Recherchierte, aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	EP 0 520 211 A (HERCULES INC.) 30. Dezember 1992 (30.12.92) Seite 2, Zeile 32 - Seite 3, Zeile 42 ; Beispiele 1,2	1-12, 15, 17, 19
A	EP 0 335 382 A (NIPPONDENSO CO. , LTD.) 04. Oktober 1989 (04.10.89) in der Anmeldung angeführt Beispiele 2 ; Tabelle 2	1-27

☐ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen:

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" Älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

01. März 2000 (01.03.00)

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

08. März 2000 (08.03.00)

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde

Europäisches Patentamt

Bevollmächtigter Bediensteter

Telefon

T-1-f-

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/DE 99/03155

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
EP 520211 A	30-12-1992	CA 2068979 A	25-12-1992
		DE 69212398 D	29-08-1996
		DE 69212398 T	05-12-1996
		JP 5221728 A	31-08-1993
		US 5439855 A	08-08-1995
EP 335382 A	04-10-1989	DE 68917966 D	13-10-1994
		DE 68917966 T	16-03-1995
		JP 1317170 A	21-12-1989
		JP 2545970 B	23-10-1996
		US 5086210 A	04-02-1992